

5/9/1

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2000 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

05861368    \*\*Image available\*\*  
ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

PUB. NO.:        10-144468    [JP 10144468 A]  
PUBLISHED:      May 29, 1998 (19980529)  
INVENTOR(s):    YOKOI HIROSHI  
                 WAKIMOTO TAKEO  
                 ISHIZUKA SHINICHI  
                 FUKUDA YOSHINORI  
APPLICANT(s):   PIONEER ELECTRON CORP [000501] (A Japanese Company or  
                 Corporation), JP (Japan)  
APPL. NO.:      08-318630    [JP 96318630]  
FILED:          November 14, 1996 (19961114)  
INTL CLASS:     [6] H05B-033/02  
JAPIO CLASS:    43.4 (ELECTRIC POWER -- Applications)

#### ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To radiate a heat of an organic EL element and provide sufficient humidity resistance by sequentially laminating at least an anode, a light emitting layer, and a cathode on a substrate having light transmitting property and employing quartz, crystal, or sapphire having thermal conductivity higher than ordinary soda glass for the substrate.

SOLUTION: A substrate 61 is made of a material having thermal conductivity higher than an ordinary soda glass, and on the substrate 61, there are laminated in order an anode 2 made of a transparent conductive film, a positive hole transport layer 4 made of an organic compound, a light emitting layer 3, an electron transport layer 5, an electron injecting layer 10, and a cathode 1. Further, each layer can be interrupted from the outside atmosphere by the substrate 61 and a glass container 7a. Instead of the glass container 7a, sealing is made possible by a coating film 7b. The coating film 7b is formed by glass paste coating, moisture absorption of an element is prevented, however, thermal dispersion is degraded. Therefore, a quartz glass, a crystal or the like having thermal conductivity is employed.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-144468

(43) 公開日 平成10年(1998) 5月29日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>  
H05B 33/02

識別記号

F I  
H05B 33/02

審査請求 未請求 請求項の数 3 FD (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平8-318630

(22) 出願日 平成8年(1996)11月14日

(71) 出願人 000005016

バイオニア株式会社  
東京都目黒区目黒1丁目4番1号

(72) 発明者 横井 啓

埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 バ  
イオニア株式会社総合研究所内

(72) 発明者 脇本 健夫

埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 バ  
イオニア株式会社総合研究所内

(72) 発明者 石塚 真一

埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 バ  
イオニア株式会社総合研究所内

最終頁に続く

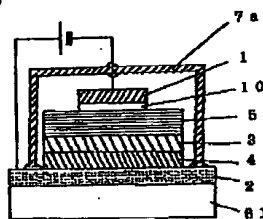
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 透明基板を通じて有機EL素子の発光層の発熱を放熱し、かつ耐湿対策も十分に行うことが可能な有機EL素子を提供することを目的とする。

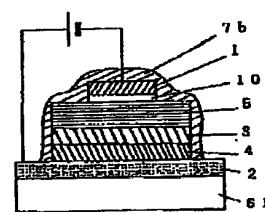
【解決手段】 光透過性を有する基板の上に少なくとも陽極、発光層、及び陰極を順次積層してなる有機EL素子であって、基板は熱伝導率が $0.7\text{W}/(\text{m}\cdot\text{deg})$ を越えるものであることを特徴とする。また、基板が石英又はサファイアからなることを特徴とする。

(a)



発光

(b)



発光

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 光透過性を有する基板の上に少なくとも陽極、発光層、及び陰極を順次積層してなる有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記基板は熱伝導率が $0.75\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{deg})$ を越えるものであることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 前記基板は石英からなることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記基板はサファイアからなることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子の基板の材料に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、ガラス板、あるいは透明な有機フィルム上に形成した蛍光体に電流を流して発光させる有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と称する）が知られている。有機EL素子としては、図3(a)に示すように、金属電極である陰極1と透明電極である陽極2との間に、有機化合物からなる正孔輸送層4、有機化合物からなる発光層3、有機化合物からなる電子輸送層5、電子注入層10及び陰極1が順に積層された構造や、又は有機化合物からなる発光層3及び有機化合物からなる正孔輸送層4が配された2層構造のもの、あるいは、陰極1と陽極2との間に、有機化合物からなる電子輸送層5、有機化合物からなる発光層3及び有機化合物からなる正孔輸送層4が積層された3層構造のものが知られている。また、陽極2と正孔輸送層4の間に正孔注入層を設け、発光効率を向上したものも知られている。

【0003】正孔輸送層4は陽極2から正孔を輸送する機能と電子をブロックする機能とを有し、電子輸送層5は陰極から電子を輸送する機能を有している。これら有機EL素子において、陽極2の外側にはガラス基板6が配されており、金属陰極1から注入された電子と陽極2から発光層3へ注入された正孔との再結合によって励起子が生じ、この励起子が放射失活する過程で光を放ち、この光が陽極2及びガラス基板6を介して外部に放出される。

【0004】陽極2には、インジウム錫酸化物（以下、ITOという）、錫酸化物等の仕事関数が大きく、発光を外部に放出させる透明導電性材料が用いられる。仕事関数は、金属や半導体の結晶表面から1個の電子を表面のすぐ外側にとりだすのに必要な、最小のエネルギーをいう。また、陰極1には、アルミニウム（Al）、マグネシウム（Mg）、インジウム（In）、銀（Ag）の

単体金属又はこれらのAl-Mg、Ag-Mg等の合金であって仕事関数が小さな材料が用いられる。

【0005】ここで陰極の重要な機能としては、第1に発光層3へ効率良く電子を注入する役割と、第2に、マトリクス構造の有機EL素子を形成するため、陰極1のラインは電流を通すバスラインとしての役割が挙げられる。この2つの機能を果たすため陰極材料に求められる性質としては、仕事関数が小さくかつ抵抗が小さい導体薄膜を形成できることが必要となる。ガラス基板6は発光表示面を形成するため光透過性を有する材料が使用され、価格が安いソーダガラスが使用されている。

【0006】上述した陰極材料は、湿気によって酸化を生じ発光特性の劣化を起こし易い。従って、図3

(b)、(c)に示すように、各機能層全体をガラス容器7aで密閉封止したり、ガラスペーストをコーティングしたコーティング膜7bを設けることにより、各機能層を周囲の空気から遮断し、吸湿を防ぐ対策がなされている。

【0007】また、発光層3には、例えば8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体等が用いられ、正孔輸送層4には、例えばN'-ジフェニル-N, N'-ビス(3メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(TPD)が好ましく用いられている。電子輸送層5には、例えば8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体等が用いられる。

## 【0008】

【発明が解決しようとする課題】上述したように有機EL素子の陰極層は、水分による特性劣化が顕著であり、空気中の水分に触れると化学変化が起こり有機物層と陰極間に剥離が生じ、発光しない部分が生じるといった問題がある。この湿気の問題を解決する方法として、図3(b)に示すガラス容器7aによる封止、図3(c)に示すコーティング膜7bによる封止が知られている。この構成によれば、各層が周囲から遮断されるため、大気中の湿気の影響を防ぐことができる。一方、素子駆動がなされる際の発熱により化合物の酸化や結晶化が起こり発光寿命が短くなるという問題も知られている。上記した封止構造は、発光層を外気から遮断する構造のため、水分の侵入を防ぐ代わりに発光層から発せられた熱を逃がしにくくする構成となっている。しかも封止を確実にを行うべくガラス容器やコーティング膜の厚みを厚くすればするほど、逆に発光層からの発熱を逃がしにくくしてしまうため、2つの問題点を同時に解決することは至難を極める。本発明は上記の問題点に鑑みなされたものであって、透明基板を通じて有機EL素子の発光層の発熱を放熱し、かつ耐湿対策も十分に行うことが可能な有機EL素子を提供することを目的とする。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、本発明の請求項1に記載の有機EL素子は、光透過

10

20

30

40

50

性を有する基板の上に少なくとも陽極、発光層、及び陰極を順次積層してなり、基板は熱伝導率が $0.75\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{deg})$ を越えるものであることを特徴とする。

また、本発明の請求項2に記載の有機EL素子は、請求項1に記載の有機EL素子であって、基板が石英からなることを特徴とする。

【0010】

【作用】本発明は以上のように構成したので、有機EL素子から発生する熱を透明基板を通じて周囲空气中に放熱することができ、かつ耐湿対策も十分に行うことが可能となる。

【0011】

【発明の実施の形態】以下に本発明を図1(a)、図1(b)を参照しつつ説明する。なお、同図において従来技術に共通する構成には同一符号を付してあり、その説明は省略する。図1(a)は、有機EL素子が発生する熱を効率的に放散して有機EL素子の劣化を解消し、しかも外部雰囲気の影響を受け易い有機化合物による各層をガラス容器により外部雰囲気から遮断保護した、性能を安定させた有機EL素子の実施の形態を示している。図1(a)において、基板61は、光透過性を有するサファイア、又は石英、すなわち石英ガラス(シリカガラスともいう)又は水晶等の通常のソーダガラスに比べ熱伝導率が高い材料で形成されている。基板61の上には、透明導電膜からなる陽極2、有機化合物からなる正孔輸送層4、有機化合物からなる発光層3、有機化合物からなる電子輸送層5、電子注入層10及び陰極1が順に積層された構造を有している。さらに、基板61とガラス容器7aにより各層を外部雰囲気から遮断するようになされている。

【0012】この電子注入層10は、例えば、上記Alq<sub>3</sub>、Bu-PBD[2-(4'-tert-Butylphenyl)-5-(biphenyl)-1,3,4-oxadiazole]などが用いられる。

【0013】このように、電子注入層10を構成する材料としては、既に様々な提案がなされているが、過去に提案されていない新規な材料として酸化物ではないアルカリ土類金属化合物(例えば、CaMoO<sub>4</sub>、BaTiO<sub>3</sub>、SrCl<sub>2</sub>、SrB<sub>6</sub>、BaAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、BaWO<sub>4</sub>、SrMoO<sub>4</sub>、SrWO<sub>4</sub>)、又は希土類化合物(例えば、CeO<sub>2</sub>、CeCl<sub>3</sub>、EuCl<sub>3</sub>、SmF<sub>3</sub>)、又はアルカリ金属の化合物を用いることができる。この薄膜層は透明であり、その仕事関数が非常に小さいために、絶縁体として機能するもののその膜厚を最適化することによって、素子を高い輝度で発光させることができる。つまり、先に記した陰極層の第1及び第2の機能を分離して、第1の機能だけを果たす電子注入層

を陰極層とは別に設ける故に、各機能層の積層順序の自由度がおおきくなり、電極層形成材料の選択の幅を拡大する。

【0014】すなわち、陰極層は、陰極層から発光層への電子注入を効率良く行う機能と、マトリクス構造の有機EL素子を形成するための電流を通すバスラインとしての役割があり、この2つの機能を分離して前者の機能だけを果たす電子注入の役割を陰極層とは別に設けることができ、電極層形成材料の選択の幅を拡大し、低印加電圧にて高輝度で連続発光させることができるようになる。

【0015】また、電子注入層10を省略して基板61、陽極2、正孔輸送層4、発光層3、電子輸送層5及び陰極1で構成しても上記利点はなくなるが有機EL素子としては機能する。

【0016】ここで、発光層3には、電子を輸送する能力を有しかつ発光能力がある、例えば8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体等が用いられる。さらに、発光層3は、キャリア正孔輸送層4には、例えばTPDが好ましく用いられている。

【0017】さらに、発光層3は、キャリア輸送性を有する有機ホスト物質と、ホスト物質からのエネルギー移動、又はキャリア再結合に応じて発光する能力のある有機ゲスト物質と、から構成された、いわゆるゲストホスト型の発光層でも良く、例えばホスト物質のAlq<sub>3</sub>やクマリン誘導体などにゲスト物質のジシアノメチレンピラン誘導体又はキナクドリン誘導体などを添加した発光層が用いられる。

【0018】次に、正孔輸送層4には、例えばTPDが好ましく用いられ、他にCTM(Carrier Transporting Materials)として知られる化合物を単独、もしくは混合物として用いることもできる。

【0019】図1(b)は、図1(a)のガラス容器7aの代わりに、コーティング膜7bにより封止した有機EL素子を示している。コーティング膜7bは、ガラスペーストのコーティングにより形成され、有機EL素子の吸湿を防止するが一方では有機EL素子の発熱に対し熱放散を低下させる。そこで、基板61は、通常のソーダガラスに比べ熱伝導率が高い石英、すなわち石英ガラス又は水晶、又はサファイアなどを用い、基板61を介して基板61の発光表示面から外部雰囲気へ熱放散を図ることにより、十分な耐湿対策を施した上で放熱対策をとることが可能となる。サファイアは、理想化学組成Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(酸化アルミニウム)の単結晶で青色のものをいう。石英は、理想化学組成SiO<sub>2</sub>であり、シリカ鉱物の代表である。窯業やガラス工業の材料に良く用いられ、とくに水晶は用途が広い。石英ガラスは、シリカ(SiO<sub>2</sub>)の網目状構造である。ソーダ石灰ガラスは、ソーダガラスともいわれ、最も普通に用いられるガラスであり、Na<sub>2</sub>O・CaO・5SiO<sub>2</sub>を中心とし

10

20

30

40

50

た組成を持つ。

【0020】一般にソーダガラスの熱伝導率は、 $0.75\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{deg})$  程度である。これに対して石英ガラスではその熱伝導率は、 $1.25 \sim 1.45\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{deg})$  程度と高く基板61に石英ガラス等の石英を用いることにより、熱放散を向上することができる。なお、石英ガラスの光透過波長領域（光透過率80%以上）は、 $0.2 \sim 9.2(\mu\text{m})$  であるから、外部への発光透過面として十分使用可能である。また、アルミナの中のサファイアを用いると、価格は高つくがその熱伝導率はさらに高く、さらなる熱放散の向上を図ることができる。サファイアの熱伝導率は、 $4.2\text{ W}/(\text{m} \cdot \text{deg})$  程度と極めて高く、光透過波長領域は、 $0.22 \sim 4.7(\mu\text{m})$  である。このように基板の材料として光透過性を有し、かつ、熱伝導率が高い材料を用いることによって透明基板をヒートシンクとして活用することができ、耐湿対策を施した上での放熱が可能となる。なお、基板材料は、上記した石英、サファイアに限ることなく、所望の光透過性を有し、なおかつ、熱伝導率が従来のソーダガラスよりも高い材料を用いれば、従来技術より湿気及び放熱対策の優れた有機EL素子を提供することができる。

【0021】上述した効果を確認するために、従来公知である基板61にソーダガラスを用いた有機EL素子と、本発明によるサファイアを用いた有機EL素子を試作し比較した。その構成材料は、基板61にソーダガラス又はサファイア、陽極2にITO、正孔注入層に銅フタロシアニン、正孔輸送層4にTPD、発光層3にAlq<sub>3</sub>、電子輸送層5にLi<sub>2</sub>O、陰極1にAlを用いた。図2は、この試作したソーダガラス基板とサファイア基板の有機EL素子の直流発光特性の時間経過を示すものである。

【0022】図2の縦軸は動作開始時点の発光輝度 $1150\text{ cd}/\text{m}^2$  に対するパーセンテージを表し、横軸は経過時間を表している。すなわち、100時間経過した時の発光輝度は、ソーダガラスの78%に対しサファイアでは83%を示している。500時間経過ではそれぞれ54%と64%に特性劣化を生じている。

【0023】次に、試作した有機EL素子の破壊試験、すなわち素子電極の一部、又はほとんどが昇華してなく

なる破壊状態への経過を比較してみると、周囲温度20℃、湿度80%の環境で、破壊直前の輝度飽和時の有機EL素子の駆動電流密度が、基板61がソーダガラスの有機EL素子では、 $1.2\text{ A}/\text{cm}^2$ （端子電圧16.9V、輝度 $45000\text{ cd}/\text{m}^2$ ）であるのに対して、基板61がサファイアの有機EL素子では、 $5.88\text{ A}/\text{cm}^2$ （端子電圧55V、輝度 $90900\text{ cd}/\text{m}^2$ ）となり、発熱による素子破壊に対しても特性の向上が図られたことが確認できた。

【0024】上述したように有機EL素子は、有機化合物の特性上、耐湿対策と放熱対策が必須であるが、本発明は、発光表示面を構成する光透過性を有する基板を、石英、サファイアなど従来用いられていたソーダガラスよりも、熱伝導率の高い光透過性材料によって形成することで封止の効果を損なうことなく放熱を行い上記両対策を施したものである。

【0025】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、有機EL素子から発生する熱を表示面となる透明基板を通じて周囲空气中に効果的に放熱することができ、かつ耐湿対策も十分に行うことが可能となり、有機EL素子の特性の劣化を改善できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明における有機EL素子の構造を示す図である。

【図2】本発明における有機EL素子の発光特性を従来の有機EL素子との比較を示す図である。

【図3】従来における有機EL素子の構造を示す図である。

【符号の説明】

1・・・陰極

2・・・陽極

3・・・発光層

4・・・正孔輸送層

5・・・電子輸送層

6・・・ガラス基板

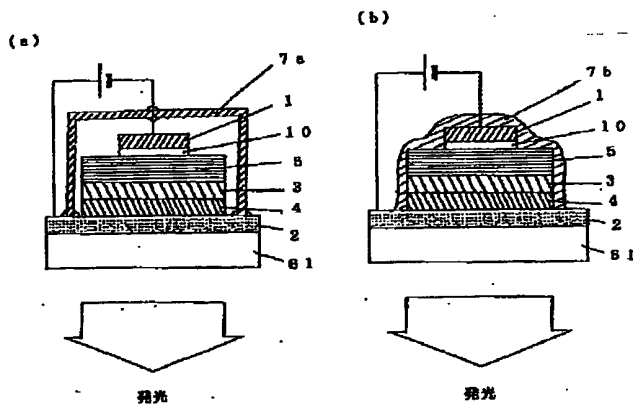
61・・・基板

7a・・・ガラス容器

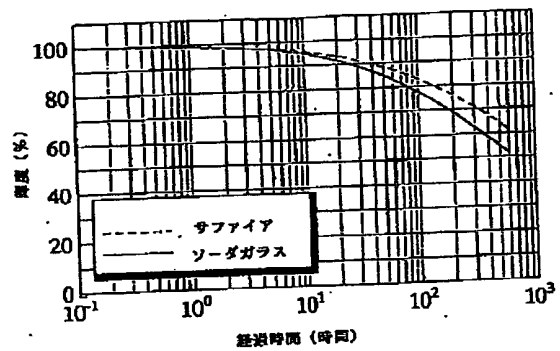
7b・・・コーティング膜

10・・・電子注入層

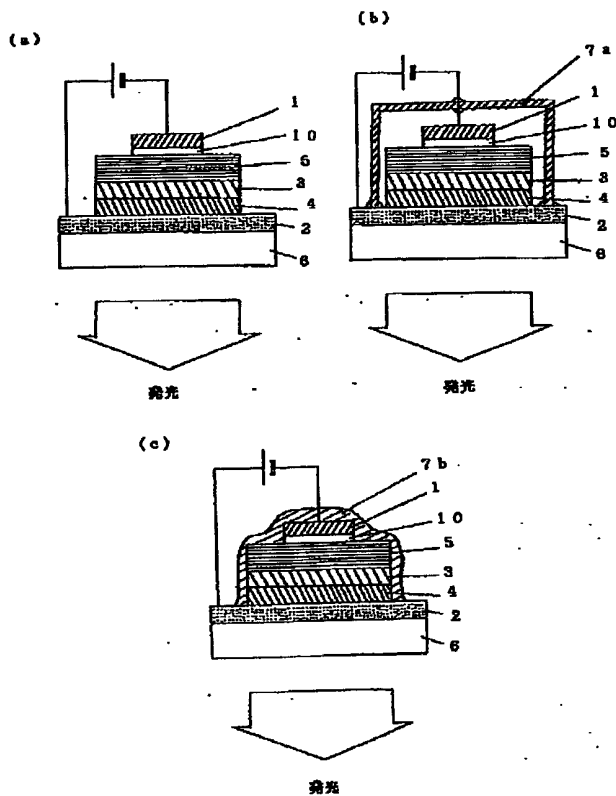
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 福田 善教  
 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パ  
 イオニア株式会社総合研究所内